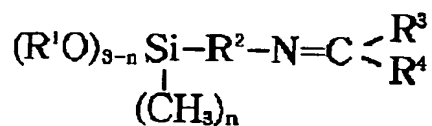


# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10147588  
 PUBLICATION DATE : 02-06-98  
 APPLICATION DATE : 18-11-96  
 APPLICATION NUMBER : 08322339



APPLICANT : SHIN ETSU CHEM CO LTD;

INVENTOR : ICHINOHE SEIJI;

INT.CL. : C07F 7/18 C09J 11/06

TITLE : PREVENTION OF EMISSION OF  
 MALODOR OF ORGANOSILICON  
 COMPOUND CONTAINING KETIMINE  
 STRUCTURE AND COMPOSITION  
 CONTAINING THE SAME COMPOUND  
 FORMULATE THEREIN



II

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent both the oxidation of the subject compound useful as a bonding improver, etc., for an epoxy compound or a polyurethane compound with heat and the emission of a malodor thereof by adding an antioxidant to an organosilicon compound having a ketimine structure.

SOLUTION: An antioxidant such as a phenolic antioxidant, e.g. hydroquinone, methoxyhydroquinone, 2,4-bis-(n-octylthio)-6-(4-hydroxy-3,5-di-t-butylanilino)-1,3,5-triazine or 2,6-di-t-butyl-4-methylphenol is added to an organosilicon compound, represented by the formula [R<sup>1</sup> is methyl or ethyl; R<sup>2</sup> is a 1-10C bivalent hydrocarbon; R<sup>3</sup> and R<sup>4</sup> are each a monovalent 1-10C hydrocarbon; (n) is 0, 1 or 2] and containing the ketimine structure to thereby prevent the emission of a malodor of the organosilicon compound, containing the ketimine structure and useful as a bonding improver, etc., capable of improving the adhesion to inorganic materials by addition thereof to an epoxy compound or a polyurethane compound.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The following general formula (1)

[Formula 1]



(The monovalent hydrocarbon radical and n the divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-10, and whose R3 and R4 R1 is carbon numbers 1-10 as for a methyl group or an ethyl group, and R2 and which may be the same or may differ from each other show 0, 1, or 2 among a formula.) The offensive odor generating prevention approach of the ketimine structure content organosilicon compound characterized by adding an anti-oxidant to the compound expressed.

[Claim 2] The offensive odor generating prevention approach of a ketimine structure content organosilicon compound according to claim 1 that an anti-oxidant is a phenolic antioxidant.

[Claim 3] An anti-oxidant is hydroquinone, methoxy hydroquinone, 2, and 4-screw. - (n-octylthio) -6 - (4-hydroxy - 3, 5-G t-butylanilino)- 1,3,5-triazine, 2,6-di-tert-butyl-4-methylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-ethylphenol, Pentaerythrityl-tetrakis [3-(3, 5-G t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate], 1, 3, 5-trimethyl - 2, 4, 6-tris (3, 5-G t-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene, The offensive odor generating prevention approach of the ketimine structure content organosilicon compound according to claim 2 which is what is chosen from - methylenebis (4-methyl-6-t-butylphenol), and 2 and 2 '2, 2'-methylenebis (4-ethyl-6-t-butylphenol).

[Claim 4] The following general formula (1)

[Formula 2]



(-- the inside of a formula, and R1 -- a methyl group or an ethyl group, and R2 -- the divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-10, and R3 and R4 -- carbon numbers 1-10 -- being the same -- even when -- you may differ -- a monovalent hydrocarbon radical -- n -- 0, 1, or 2 -- being shown .) -- ketimine structure content organosilicon compound combination constituent characterized by coming to contain the compound expressed and an anti-oxidant.

[Claim 5] The ketimine structure content organosilicon compound combination constituent according to claim 4 whose anti-oxidant is a phenolic antioxidant.

[Claim 6] An anti-oxidant is hydroquinone, methoxy hydroquinone, 2, and 4-screw. - (n-octylthio) -6 - (4-hydroxy - 3, 5-G t-butylanilino)- 1,3,5-triazine, 2,6-di-tert-butyl-4-methylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-ethylphenol, Pentaerythrityl-tetrakis [3-(3, 5-G t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate], 1, 3, 5-trimethyl - 2, 4, 6-tris (3, 5-G t-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene, The ketimine structure content organosilicon compound combination constituent according to claim 5 which is what is chosen from - methylenebis

(4-methyl-6-t-butylphenol), and 2 and 2 '2, 2'-methylenebis (4-ethyl-6-t-butylphenol).

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the constituent with which the offensive odor generating prevention approach of a ketimine structure content organosilicon compound and this organosilicon compound which are shown by the following general formula (1) which adds to an epoxy compound, an urethane compound, etc. and is used as an adhesion amelioration agent to metals, such as an inorganic material, for example, glass, iron, aluminum, and stainless steel, etc. were blended.

[0002]

[Formula 3]



(The monovalent hydrocarbon radical and n the divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-10, and whose R3 and R4 R1 is carbon numbers 1-10 as for a methyl group or an ethyl group, and R2 and which may be the same or may differ from each other show 0, 1, or 2 among a formula.)

[0003]

[Description of the Prior Art] It adds to an epoxy compound or a polyurethane compound, and the compound conventionally expressed with the above-mentioned general formula (1) is useful as an adhesion amelioration agent to an inorganic material. The amino functionality silane coupling agent by which this is usually known, for example, gamma-aminopropyl triethoxysilane, If N-beta-aminoethyl-gamma-aminopropyl trimethoxysilane is added to an epoxy compound or a polyurethane compound, in order to react also at a room temperature, the description that will collapse easily, the 1st class amino group will be reproduced if moisture or moisture is contacted, and the reactivity of the amino group revives although this compound does not show reactivity with inactive to preservation stability being what cannot be used bad with this structure -- \*\*\*\* -- it is because it is. However, heat and light decomposed and the problem of generating the malodorous substance of low \*\* has produced this compound.

[0004] However, the place to current, disassembly of this compound is prevented, the technique of preventing generating of a malodorous substance is not established, but this amelioration is called for.

[0005] This invention aims at offering the offensive odor generating prevention approach of a ketimine structure content organosilicon compound and this organosilicon compound combination constituent which solved such disadvantage and a fault.

[0006]

[The means for solving a technical problem and the gestalt of implementation of invention] In order that this invention persons may attain the above-mentioned purpose, as a result of inquiring wholeheartedly, the organosilicon compound of the ketimine structure content expressed with the above-mentioned formula (1) carried out the knowledge of producing heat or the various aldehydes of low \*\* in

decomposition by light, and a carboxylic acid, and this emanating an offensive odor owing to. As a result of advancing various deodorization and examination of the deodorization approach, to this compound For this reason, under manufacture or after manufacture, an antioxidant -- desirable -- a phenolic antioxidant -- especially -- desirable -- a hydroquinone -- A methoxy hydroquinone, 2, 4-screw - (n-octylthio) -6 -(4-hydroxy - 3, 5-G t-butylanilino)- 1,3,5-triazine, 2,6-di-tert-butyl-4-methylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-ethylphenol, Pentaerythrityl-tetrakis [3-(3, 5-G t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate], 1, 3, 5-trimethyl -2, 4, 6-tris (3, 5-G t-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene, It came to make a header and this invention for oxidation by heat being prevented and an offensive odor being prevented by adding - methylenebis (4-methyl-6-t-butylphenol), and 2 and 2 '2, 2'-methylenebis (4-ethyl-6-t-butylphenol).

[0007] Therefore, this invention offers the ketimine structure content organosilicon compound combination constituent characterized by coming to contain the offensive odor generating prevention approach, and this organosilicon compound and anti-oxidant of the ketimine structure content organosilicon compound characterized by adding an anti-oxidant to the ketimine structure content organosilicon compound expressed with the above-mentioned formula (1).

[0008] Hereafter, lessons is taken from this invention and it explains in more detail. The organosilicon compound of the ketimine structure content used in this invention is expressed with the following general formula (1).

[0009]

[Formula 4]

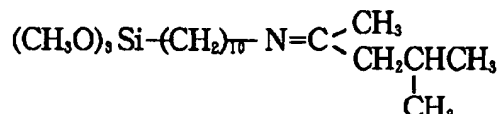
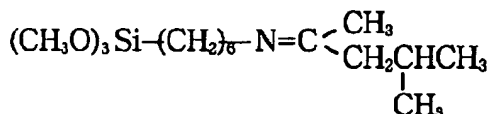
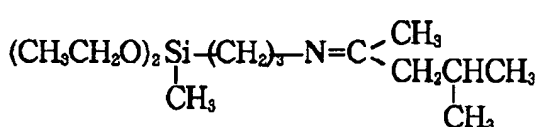
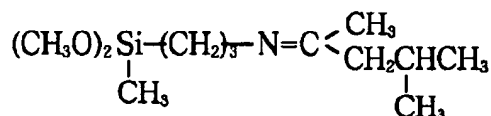
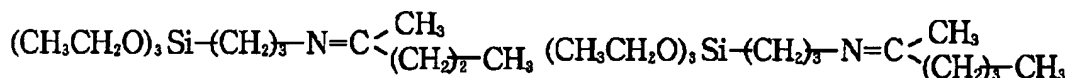
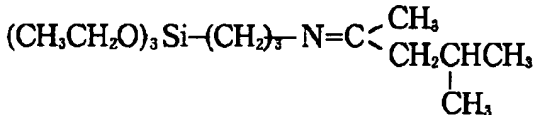
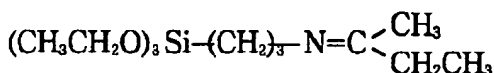
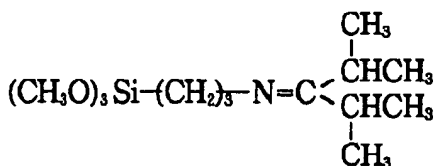
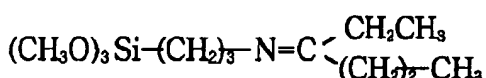
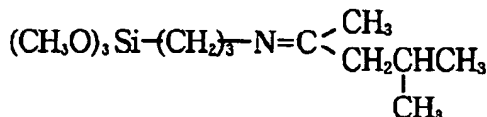
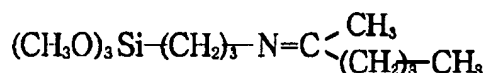
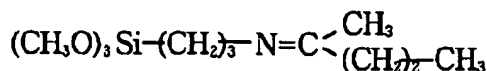
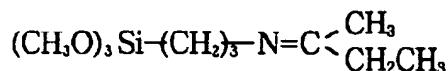
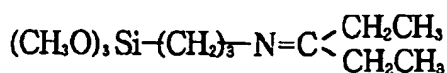
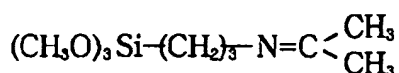


[0010] R1 shows CH3- or CH3CH2- among a formula, and R2 shows the divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-10. For example, -CH2-, -CH2CH2-, -CH2CH2CH2-, -(CH2)4-, -CH25-, -(CH2)6-, -(CH2)8-, -(CH2)10-, - Alkylene groups, arylene radicals, etc., such as CH2CH(CH3) CH2- and -CH (CH3) CH2-, are mentioned. The monovalent hydrocarbon radical of the carbon numbers 1-10 which may be the same as for R3 and R4, or may differ is shown. For example, the alkyl group of -CH3, -CH2CH3, -CH2CH2CH3, -(CH2)3-CH3, -CH(CH3) CH3, -CH2CH(CH3) CH3, -(CH2)5-CH3, -(CH2) 7-CH3, and -(CH2) 9-CH3 grade and also a cycloalkyl radical, An aryl group, an aralkyl radical, an alkenyl radical, etc. are mentioned, and n shows 0, 1, or 2.

[0011] As these compounds, the following are shown, for example.

[0012]

[Formula 5]



[0013] In this invention, an antioxidant is added to the above-mentioned ketimine structure content organosilicon compound. As an antioxidant, although selected suitably, a phenolic antioxidant is desirable. As this phenolic antioxidant, a hydroquinone, a methoxy hydroquinone, 2, 4-screw - (n-octylthio) -6 -(4-hydroxy - 3, 5-G t-butylanilino)- 1,3,5-triazine, 2,6-di-tert-butyl-4-methylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-ethylphenol, Pentaerythrityl-tetrakis [3-(3, 5-G t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate], 1, 3, 5-trimethyl -2, 4, 6-tris (3, 5-G t-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene, - methylenebis (4-methyl-6-t-butylphenol), and 2 and 2 '2, 2'-methylenebis (4-ethyl-6-t-butylphenol) etc. can be mentioned, it is independent in these one sort, or two or more sorts can be used together.

[0014] Although the addition of the anti-oxidant to a ketimine structure content organosilicon compound is arbitrary, it is required not to reduce the engine performance of a ketimine structure content

organosilicon compound, and about 0.001 - 10 % of the weight is desirable to this compound, and it is about 0.01 - 1 % of the weight more preferably. Deodorization engine performance sufficient at less than 0.001 % of the weight is not obtained, but when [ than 10 % of the weight ] more, there is a possibility that the engine performance of an organosilicon compound and the constituent using this may fall.

[0015] The constituent which blended this compound contains this compound and the above-mentioned antioxidant. Being able to use this constituent for the adhesion amelioration agent of the application which uses this compound, for example, the inorganic material containing an epoxy compound or an urethane compound, etc., offensive odor generating of a ketimine structure content organosilicon compound is prevented by combination of the above-mentioned anti-oxidant, and the adhesion amelioration agent containing this constituent etc. demonstrates the effectiveness of this compound effectively. Moreover, even if it adds an antioxidant to the constituent containing an inorganic material and the above-mentioned ketimine structure content organosilicon compound, it has effectiveness enough.

[0016]

[Effect of the Invention] According to this invention, by adding and using an antioxidant together to a ketimine structure content organosilicon compound, oxidation by heat is prevented and an offensive odor is prevented.

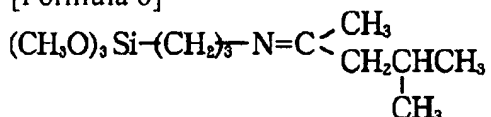
[0017]

[Example] Although an example and the example of a comparison are shown and this invention is explained concretely hereafter, this invention is not restricted to the following example.

[0018] [Example 1] It added in the amount which shows a hydroquinone to 100g of compounds expressed with the following type in Table 1, and 2.0g was taken on the aluminum petri dish, after one-day neglect, it riped at 80 degrees C under sealing for 24 hours, the aluminum petri dish was wide opened after cooling, and offensive odor generating was checked.

[0019]

[Formula 6]



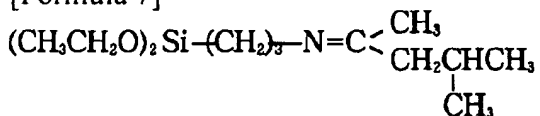
[0020] [Examples 2-10] It added in the amount which shows the antioxidant shown in Table 1 instead of a hydroquinone in Table 1, and the same trial as an example 1 was performed.

[0021] [Example 1 of a comparison] The same trial as an example 1 was performed except not adding a hydroquinone in an example 1.

[0022] [Examples 11-15] It added to 100g of compounds expressed with the following type instead of the compound used in the example 1 in the amount which shows the antioxidant shown in Table 2 in Table 2, and the same trial as an example 1 was performed to them.

[0023]

[Formula 7]



[0024] [Example 2 of a comparison] The same trial as an example 11 was performed except not adding a hydroquinone in an example 11.

[0025] The following five-step evaluation showed how to feel the offensive odor at the time of <evaluation> disconnection.

O : an offensive odor is not sensed at all.

○ : an offensive odor is hardly sensed.

\*\* : An offensive odor is sensed a few.

x: An offensive odor is sensed strong.

[0026]

[Table 1]

		酸化防止剤	添加量 (g)	評価
実施例	1	ヒドロキノン	0.001 0.01 0.1 1.0	○ ○ ⊕ ⊕
	2	メトキシヒドロキノン	0.1	⊕
	3	2, 6-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-メチルフェノール	0.1	○
	4	2, 4-ビス-( <i>n</i> -オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ- <i>t</i> -ブチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン	0.1	○
	5	2, 6-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-エチルフェノール	0.1	○
	6	ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3, 5-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート〕	0.1	⊕
	7	1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン	0.1	⊕
	8	2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6- <i>t</i> -ブチルフェノール)	0.1	⊕
	9	2, 2'-メチレンビス(4-エチル-6- <i>t</i> -ブチルフェノール)	0.1	○
	10	<i>n</i> -オクタデシル-3-(3,5-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート	0.1	⊕
比較例	1	-	-	×

[0027]

[Table 2]

		酸化防止剤	添加量 (g)	評価
実施例	11	ヒドロキノン	0.1	⊕
	12	2- <i>t</i> -ブチル-6-(3- <i>t</i> -ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート	0.1	○
	13	4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-8- <i>t</i> -ブチルフェノール)	0.1	○
	14	4,4'-チオ-ビス(3-メチル-6- <i>t</i> -ブチルフェノール)	0.1	○
	15	ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3,5-ジ- <i>t</i> -ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート〕	0.1	⊕
比較例	2	-	-	×

[Translation done.]



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-147588

(43) 公開日 平成10年(1998)6月2日

(51) Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

P I

C 0 7 F 7/18

C 0 7 F 7/18

P

C 0 9 J 11/06

C 0 9 J 11/06

審査請求 未請求 請求項の数 6 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平8-322339

(22) 出願日 平成8年(1996)11月18日

(71) 出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72) 発明者 柳澤 秀好

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコン電子材料

技術研究所内

(72) 発明者 一戸 省二

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコン電子材料

技術研究所内

(74) 代理人 弁理士 小島 隆司 (外1名)

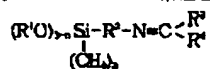
(54) 【発明の名称】 ケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法及び該化合物配合組成物

(57) 【要約】

【解決手段】 下記一般式(1)で表される化合物に酸化防止剤を添加することを特徴とするケチミン構造含有\*

\* 有機珪素化合物の悪臭発生防止方法。

【化1】



... (1)

(式中、R<sup>1</sup>はメチル基又はエチル基、R<sup>2</sup>は炭素数1～10の2価炭化水素基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は炭素数1～10の同一でも異なってもよい1価炭化水素基、nは0、1又は2を示す。)

【効果】 本発明によれば、ケチミン構造含有有機珪素化合物に酸化防止剤を添加、併用することで、熱による酸化が防止され、悪臭が防止される。

(2)

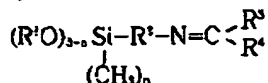
特開平10-147588

1

2

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(1)



\*

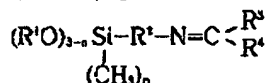
\*【化1】

... (1)

(式中、R<sup>1</sup>はメチル基又はエチル基、R<sup>2</sup>は炭素数1～10の2価炭化水素基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は炭素数1～10の同一でも異なってもよい1価炭化水素基、nは0、1又は2を示す。)で表される化合物に酸化防止剤を添加することを特徴とするケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法。

【請求項2】 酸化防止剤がフェノール系酸化防止剤である請求項1記載のケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法。

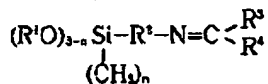
【請求項3】 酸化防止剤が、ヒドロキノン、メトキシヒドロキノン、2,4-ビス-(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2,6-ジ-tert-ブチル



(式中、R<sup>1</sup>はメチル基又はエチル基、R<sup>2</sup>は炭素数1～10の2価炭化水素基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は炭素数1～10の同一でも異なってもよい1価炭化水素基、nは0、1又は2を示す。)で表される化合物と酸化防止剤とを含有してなることを特徴とするケチミン構造含有有機珪素化合物配合組成物。

【請求項5】 酸化防止剤がフェノール系酸化防止剤である請求項4記載のケチミン構造含有有機珪素化合物配合組成物。

【請求項6】 酸化防止剤が、ヒドロキノン、メトキシヒドロキノン、2,4-ビス-(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕、1,3,5-トリメチル-



(式中、R<sup>1</sup>はメチル基又はエチル基、R<sup>2</sup>は炭素数1～10の2価炭化水素基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は炭素数1～10の同一でも異なってもよい1価炭化水素基、nは0、1又は2を示す。)

【0003】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】従来より、上記一般式(1)で表される化合物は、エポキシ化合物やポリウレタン化合物に添加し、無機材料への接着改良剤として有用である。これは、周知知られているア

※ル-4-メチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス〔3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル〕ベンゼン、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)から選ばれるものである請求項2記載のケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法。

【請求項4】 下記一般式(1)

【化2】

... (1)

★2,4,6-トリス〔3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル〕ベンゼン、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)から選ばれるものである請求項5記載のケチミン構造含有有機珪素化合物配合組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、エポキシ化合物やウレタン化合物などに添加して無機材料、例えばガラス、鉄、アルミニウム、ステンレススチール等の金属などに対する接着改良剤として用いられる下記一般式(1)で示されるケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法及び該有機珪素化合物が配合された組成物に関する。

【0002】

【化3】

... (1)

ミノ官能性シランカップリング剤、例えばγ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-アミノエチル-γ-アミノプロピルトリメトキシシランをエポキシ化合物やポリウレタン化合物に添加すると、室温でも反応するため、保存安定性が悪く使用できないものであるのに対し、本化合物は、この構造のままでは不活性で反応性を示さないが、湿気あるいは水分と接触すると容易に崩壊して1級アミノ基が再生され、アミノ基の反応性が復活するという特徴をもっていることによる。しかしなが

(3)

特開平10-147588

3

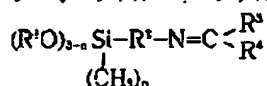
ら、本化合物は熱や光により分解し、低沸の悪臭物質を発生するという問題が生じている。

【0004】しかしながら、現在までのところ、この化合物の分解を防ぎ、悪臭物質の発生を防止する技術は確立されておらず、この改良が求められている。

【0005】本発明はこのような不利、欠点を解決したケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法及び該有機珪素化合物配合組成物を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、上記式(1)で表されるケチミン構造含有有機珪素化合物は、熱あるいは光による分解で低沸の各種アルデヒド、カルボン酸を生じ、これが原因で悪臭を生じることを知見した。このため、種々の臭気、防臭方法の検討を進めた結果、本化合物に製造中あるいは製造後、酸化防止剤、好ましくはフェノール系酸化防止剤、特に好ましくはヒドロキノン、メトキシヒドロキノン、2, 4-ビス-(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル、



【0010】式中、R<sup>1</sup>はCH<sub>3</sub>-又はCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-を示し、R<sup>2</sup>は炭素数1~10の2価炭化水素基を示し、例えば-CH<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-, -, -(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>5</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>-, -, -(CH<sub>2</sub>)<sub>8</sub>-, -, -(CH<sub>2</sub>)<sub>10</sub>-, -, -CH<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>-, -CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-, -CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>-等のアルキレン基やアリレン基などが挙げられ、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は同一でも異なってもよい炭素数1~10の1価炭化水素基を示し、例えば-CH<sub>3</sub>-, -CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>-, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-CH<sub>3</sub>-, -CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>3</sub>-,

4

\*ノール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス〔3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル〕ベンゼン、2, 2'-メチレンビス〔4-メチル-6-tert-ブチルフェノール〕、2, 2'-メチレンビス〔4-エチル-6-tert-ブチルフェノール〕を添加することにより、熱による酸化が防止され、悪臭が防止されることを見出し、本発明をなすに至った。

19

【0007】従って、本発明は、上記式(1)で表されるケチミン構造含有有機珪素化合物に酸化防止剤を添加することを特徴とするケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生防止方法、及び該有機珪素化合物と酸化防止剤とを含有してなることを特徴とするケチミン構造含有有機珪素化合物配合組成物を提供する。

【0008】以下、本発明につき更に詳しく説明する。本発明において使用するケチミン構造含有有機珪素化合物は、下記一般式(1)で表される。

【0009】

【化4】

… (1)

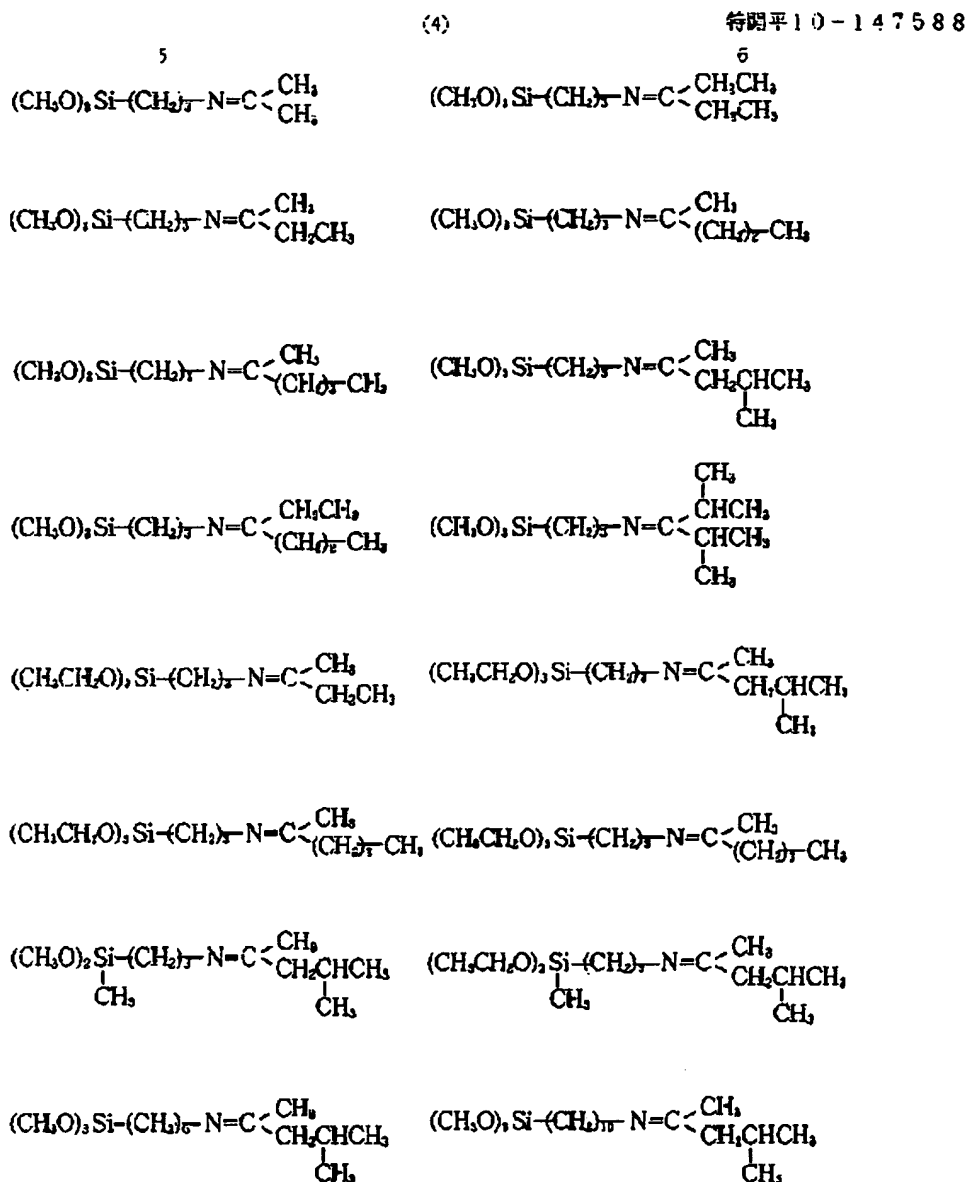
CH<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-CH<sub>2</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>5</sub>-CH<sub>2</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>-CH<sub>2</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>8</sub>-CH<sub>2</sub>-, -(CH<sub>2</sub>)<sub>10</sub>-CH<sub>2</sub>-, 更にシクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルケニル基などが挙げられ、nは0, 1又は2を示す。

30

【0011】これらの化合物としては、例えば下記ものが示される。

【0012】

【化5】



【0013】本発明においては、上記ケチミン構造含有有機珪素化合物に酸化防止剤を添加する。酸化防止剤としては、適宜選定されるが、フェノール系酸化防止剤が好ましい。このフェノール系酸化防止剤としては、ヒドロキノン、メトキシヒドロキノン、2,4-ビス-(*n*-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-*t*-ブチルアニリン)-1,3,5-トリアジン、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス〔3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル〕ベンゼン、

2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)などを挙げることができ、これらの1種を単独で又は2種以上を併用することができる。

【0014】ケチミン構造含有有機珪素化合物への酸化防止剤の添加量は任意であるが、ケチミン構造含有有機珪素化合物の性能を低下させないことが必要であり、該化合物に対し0.001~10重量%程度が好ましく、より好ましくは0.01~1重量%程度である。0.001重量%未満では十分な防臭性能が得られず、10重量%より多いと有機珪素化合物及びこれを用いた組成物の性能が低下するおそれがある。

(5)

特開平10-147588

8

7

【0015】本化合物を配合した組成物は、本化合物及び上記酸化防止剤を含有する。この組成物は、本化合物を使用する用途、例えばエポキシ化合物やウレタン化合物を含む無機材料への接着改良剤などに用いることができ、この組成物を含む接着改良剤などは、上記酸化防止剤の配合によりケチミン構造含有有機珪素化合物の悪臭発生が防止され、本化合物の効果を有効に発揮する。また、無機材料と上記ケチミン構造含有有機珪素化合物とを含む組成物に酸化防止剤を添加しても十分効果を有する。

【0016】

【発明の効果】本発明によれば、ケチミン構造含有有機珪素化合物に酸化防止剤を添加、併用することで、熱による酸化が防止され、悪臭が防止される。

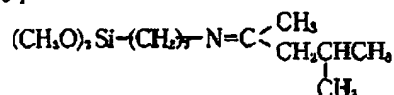
【0017】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

【0018】（実施例1）下記式で表される化合物100gにヒドロキノンを表1に示す量にて添加し、アルミシャーレに2.0g取り、1日放置後、そのアルミシャーレを密閉下、80℃にて24時間熱成し、冷却後開放し、悪臭発生の確認を行った。

【0019】

【化6】



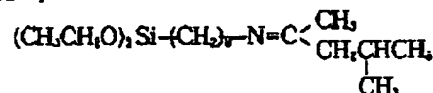
【0020】（実施例2～10）ヒドロキノンの代わりに表1に示す酸化防止剤を表1に示す量にて添加し、実施例1と同様の試験を行った。

【0021】（比較例1）実施例1においてヒドロキノンを添加しない以外は、実施例1と同様の試験を行った。

【0022】（実施例11～15）実施例1で用いた化合物の代わりに下記式で表される化合物100gに、表2に示す酸化防止剤を表2に示す量にて添加し、実施例1と同様の試験を行った。

【0023】

【化7】



【0024】（比較例2）実施例11においてヒドロキノンを添加しない以外は、実施例11と同様の試験を行った。

【0025】＜評価＞開放時の悪臭の感じ方を下記の5段階評価で示した。

◎：全く悪臭を感じない。

○：殆ど悪臭を感じない。

△：少し悪臭を感じる。

×：強く悪臭を感じる。

【0026】

【表1】

(6)

特開平10-147588

9

15

	酸化防止剤	添加量 (g)	評価
実施例	1 ヒドロキノン	0.001 0.01 0.1 1.0	○ ○ ◎ ◎
	2 メトキシヒドロキノン	0.1	◎
	3 2, 6-ジ-1-ブチル-4-メチルフェノール	0.1	○
	4 2, 4-ビス-(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-1-ブチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン	0.1	○
	5 2, 6-ジ-1-ブチル-4-エチルフェノール	0.1	○
	6 ペンタエリスリチル-テトラキス[3-(3, 5-ジ-1-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]	0.1	◎
	7 1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(8, 8-ジ-1-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン	0.1	◎
	8 2, 8'-メチレンビス(4-メチル-6-1-ブチルフェノール)	0.1	◎
	9 2, 8'-メチレンビス(4-エチル-6-1-ブチルフェノール)	0.1	○
	10 n-オクタデシル-8-(3,5-ジ-1-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート	0.1	◎
比較例	1 -	-	×

[0027]

\* \* [表2]

	酸化防止剤	添加量 (g)	評価
実施例	11 ヒドロキノン	0.1	◎
	12 2-1-ブチル-6-(8-1-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート	0.1	○
	13 4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-1-ブチルフェノール)	0.1	○
	14 4,4'-チオ-ビス(3-メチル-6-1-ブチルフェノール)	0.1	○
	15 ペンタエリスリチル-テトラキス[3-(3,5-ジ-1-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]	0.1	◎
比較例	2 -	-	×